

ИЗМЕРЕНИЕ СКОРОСТЕЙ РЕАКЦИЙ $^{102}\text{Pd}(n, \gamma) ^{103}\text{Pd}$ И $^{102}\text{Ru}(n, \gamma) ^{103}\text{Ru}$ В ГОРИЗОНТАЛЬНОМ КАНАЛЕ РЕАКТОРА ИР-8 НИЦ “КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ”

© 2024 г. В. А. Загрядский¹⁾, К. О. Королев^{1)*}, Я. М. Кравец¹⁾, Т. М. Кузнецова¹⁾, А. В. Курочкин¹⁾, К. А. Маковеева¹⁾, И. И. Скобелин¹⁾, А. Н. Стрепетов¹⁾, Т. А. Удалова¹⁾

Поступила в редакцию 08.02.2024 г.; после доработки 22.04.2024 г.; принята к публикации 22.04.2024 г.

Метастазирование является одной из основных причин рецидивов и последующей высокой смертности от рака. Метастазы могут содержать очень мало клеток и распространяться по всему организму. Несмотря на существующее разнообразие диагностических методов визуализации, на практике разрешение ни одного из них не позволяет однозначно диагностировать наличие опухоли (сгустка раковых клеток) размером менее 1–2 мм. После хирургического вмешательства и удаления опухоли пациентам, как правило, предлагается пройти курсы химиотерапии, дистанционной лучевой терапией или радионуклидной терапии с α - или β -эмиттерами. Указанная терапия имеет побочные эффекты, что приводит к дополнительным рискам и может мешать продолжению лечения. В последнее время в ряде работ в отличие от традиционного подхода вместо α - или β -эмиттеров предлагается использовать радионуклиды “ближнего действия” [1–3]. В качестве терапевтических агентов “ближнего действия” удобно использовать эмиттеры Оже или конверсионных электронов. Оже-электроны и конверсионные электроны имеют малый пробег и высокую удельную линейную потерю энергии в биологической ткани, они способны повреждать клетки в пределах нескольких десятков микрон, но не оказывают радиотоксического действия на больших расстояниях, не повреждая здоровые клетки и ткани. К наиболее эффективным и удобным для практического применения эмиттерам Оже и конверсионных электронов можно отнести $^{103\text{m}}\text{Rh}$ ($T_{1/2} = 56.1$ мин), который имеет наименьшее отношение числа γ -квантов к электронам [1] и может быть получен генераторным способом. Предшественниками $^{103\text{m}}\text{Rh}$ ($T_{1/2} = 56.1$ мин) в генераторе могут быть ^{103}Ru ($T_{1/2} = 39.247$ сут) или ^{103}Pd ($T_{1/2} = 16.99$ сут). С целью уточнения перспектив разработки указанных предшественников в работе измеряли скорости реакций $^{102}\text{Ru}(n, \gamma) ^{103}\text{Ru}$ и $^{102}\text{Pd}(n, \gamma) ^{103}\text{Pd}$ при облучении нейтронами металлического рутения природного изотопного состава и металлического палладия, обогащенного по изотопу ^{102}Pd до 96.36%, в горизонтальном экспериментальном канале реактора ИР-8.

DOI: 10.31857/S0044002724050011, EDN: JGQMUZ

1. УСТРОЙСТВО И СХЕМА РАЗМЕЩЕНИЯ ГОРИЗОНТАЛЬНОГО КАНАЛА В РЕАКТОРЕ ИР-8

Для наработки радиоизотопов ^{103}Ru и ^{103}Pd был выбран горизонтальный экспериментальный канал, представляющий собой две изогнутые в горизонтальной плоскости трубы диаметром 159 мм с толщиной стенки 4 мм из нержавеющей стали марки 1X18H10T. Расстояние между трубами в месте соединения 25 см, на выходе из биологической защиты 50 см. Внутренняя поверхность труб отшлифована до зеркального блеска. Радиус кривизны труб ~ 8 м. Трубы расположены одна над другой и соединены друг с другом коротким наклонным участком. Конец нижней трубы длиной 30 см входит в бериллиевый отражатель реактора. Нижняя ветвь канала (нижняя труба) оборудована пневматической почтой. Под действием сжатого воздуха контейнер с исследуемым образцом по нижней трубе быстро размещается в отражателе и после облучения извлекается из него [4].

2. ТЕХНИКА ОБЛУЧЕНИЯ ОБРАЗЦОВ РУТЕНИЯ И РОДИЯ

Образец металлического рутения природного изотопного состава массой 105 мг герметично заваривали в кварцевой ампуле диаметром 8 мм и высотой 30 мм. Ампулу помещали в алюминиевый контейнер диаметром 13 мм, который при помощи пневматической почты подавали на границу канала в бериллиевом отражателе (см. рис. 1). Образец металлического палладия массой 4.6 мг, обогащенный по изотопу ^{102}Pd , упаковывали аналогично образцу металлического рутения и с помощью пневматической почты также доставляли для облучения на границу канала.

Облучения образцов рутения и палладия проводили последовательно во время разных сеансов работы реактора ИР-8. Облучение образца рутения проводили в течение 23.5 ч при средней тепловой мощности 5 МВт. Облучение образца палладия проводили в течение 97 ч при средней тепловой мощности 5.8 МВт. После облучений алюминиевые контейнеры с образцами при помощи пневматической почты извлекали из бериллиевого отражателя и в транспортном контейнере перевозили в радиохимическую лабораторию для из-

¹⁾ Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

* E-mail: kirik.korolev@yandex.ru

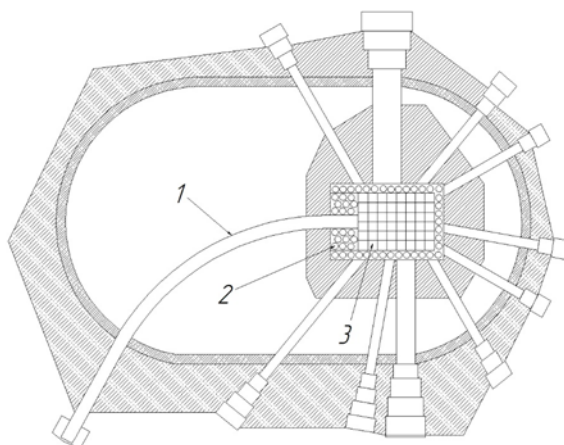


Рис. 1. Схема размещения горизонтального экспериментального канала в реакторе ИР-8: 1 — горизонтальный экспериментальный канал; 2 — бериллиевый отражатель; 3 — активная зона.

мерения наработанной активности ^{103}Ru и ^{103}Pd и последующей их радиохимической переработки.

3. ИЗМЕРЕНИЕ АКТИВНОСТИ ^{103}Ru

Измерения активности ^{103}Ru проводили в течение нескольких периодов полураспада ($T_{1/2} = 39.35$ сут). Время измерения не превышало 1 ч. Активность ^{103}Ru определяли по пику полного поглощения γ -квантов по линии $E\gamma = 497.085$ кэВ ($K\gamma = 91\%$) [5]. Измерения проводили с помощью γ -спектрометра фирмы ORTEC GEM 35P4 (США) с детектором из сверхчистого германия. При измерении активности образец рутения в кварцевой ампуле, предварительно извлеченный из алюминиевого контейнера, устанавливали на расстоянии 42 см от торцевой поверхности детектора. При измерениях активности мертвое время спектрометра не превышало 10%. Энергетическую зависимость эффективности регистрации γ -квантов детектором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических γ -источников из комплекта ОСГИ. В качестве иллюстрации на рис. 2 приведен фрагмент аппаратного спектра γ -квантов облученного образца рутения, измеренный через 4 мес. после облучения. Кроме ^{103}Ru в аппаратном спектре были идентифицированы γ -линии, принадлежащие радиоизотопу ^{192}Ir , который был наработан на примеси иридия. Оценка примеси иридия в образце рутения, сделанная на основе экспериментальных результатов и сечений для тепловых нейтронов из библиотеки TENDL 2019 [6], показала, что величина примеси не превышала 0.01%.

4. ИЗМЕРЕНИЕ АКТИВНОСТИ ^{103}Pd

Измерения активности ^{103}Pd также проводили в течение нескольких периодов полураспада ($T_{1/2} = 16.991$ сут). Время измерения не превышало 1 ч.

Активность ^{103}Pd определяли по пику полного поглощения γ -квантов по линии $E\gamma = 357.45$ кэВ ($K\gamma = 0.0221\%$) [5]. Измерения проводили в той же геометрии и с помощью того же γ -спектрометра, что и при измерении активности ^{103}Ru . Несмотря на относительно маленький выход используемой для определения активности ^{103}Pd γ -линии, она надежно выделялась в аппаратном спектре. В качестве иллюстрации на рис. 3 приведен фрагмент аппаратного спектра γ -квантов облученного образца палладия, измеренного через 2 сут после облучения. В аппаратном спектре кроме ^{103}Pd были идентифицированы γ -линии, принадлежащие радиоизотопам родия и серебра, которые могли быть наработаны в реакциях на быстрых нейтронах, а также на примесных изотопах палладия.

5. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Величина активности ^{103}Ru в облученном нейтронами образце металлического рутения массой 105 мг на конец облучения составила величину (25.8 ± 4.1) МБк. Соответствующая величина активности ^{103}Pd в облученном нейтронами образце металлического палладия, обогащенного по изотопу ^{102}Pd (96.36%), массой 4.6 мг на конец облучения составила величину (39.4 ± 4.7) МБк. С целью идентичного представления результатов указанная величина активности ^{103}Pd приведена к мощности реактора 5 МВт, при которой облучали образец рутения. Погрешности экспериментальных значений активностей приведены для доверительной вероятности 68%. Учтенными составляющими погрешностей являлись: погрешность определения эффективности детектора, погрешность определения площадей пиков полного поглощения γ -квантов в аппаратных спектрах, погрешность использованных для определения активностей квантовых выходов. Скорости реакций

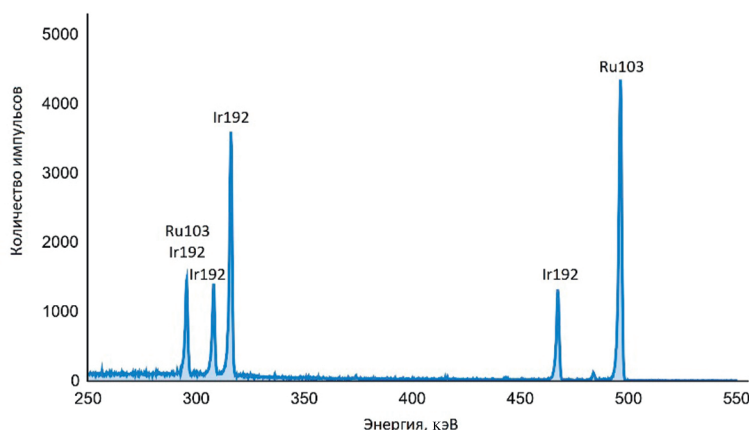


Рис. 2. Фрагмент аппаратного γ -спектра облученного нейтронами образца металлического рутения через 4 мес после облучения.

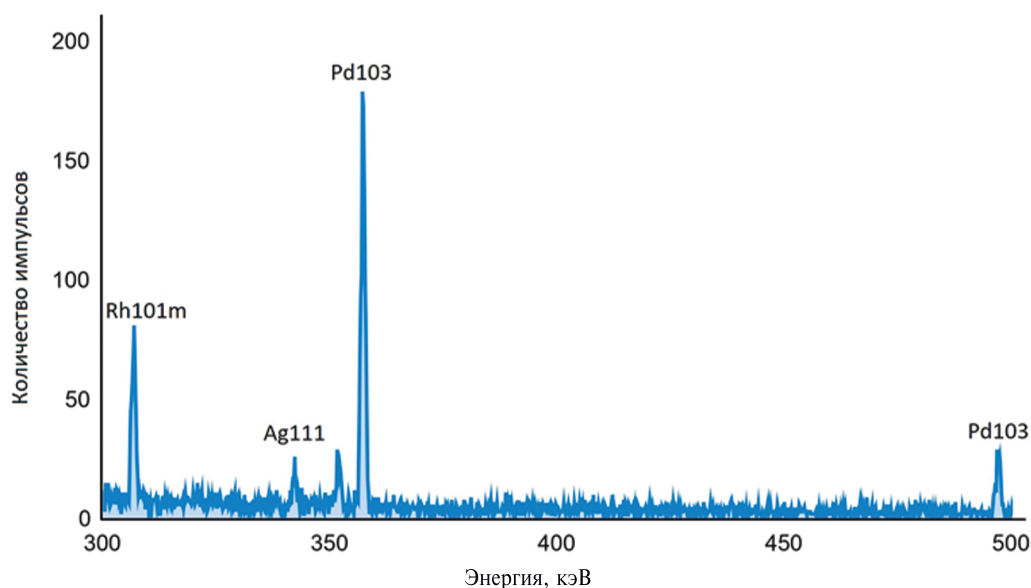


Рис. 3. Фрагмент аппаратного γ -спектра облученного нейтронами образца металлического палладия через 2 сут после облучения.

$^{102}\text{Pd}(n, \gamma)^{103}\text{Pd}$ и $^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$, которые достигаются в небольших образцах палладия и рутения при облучении нейтронами в экспериментальном горизонтальном канале реактора ИР-8 на мощности 5 МВт, были получены с помощью измеренных активностей ^{103}Ru и ^{103}Pd по формуле (1):

$$V = A/N(1 - e^{-\lambda T}) \quad (1)$$

Здесь V (с^{-1}) — скорость реакции $^{102}\text{Pd}(n, \gamma)^{103}\text{Pd}$ ($^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$) в зоне облучения образцов экспериментального горизонтального канала реактора ИР-8 при работе реактора на мощности 5 МВт. A (с^{-1}) — активность ^{103}Pd (^{103}Ru) в облученном образце палладия (рутения) на конец облучения. N — количе-

ство ядер ^{102}Pd (^{102}Ru) в облученном образце палладия (рутения). λ (с^{-1}) — постоянная распада ^{103}Pd (^{103}Ru). T (с) — время облучения образца ^{102}Pd (^{102}Ru) на мощности реактора 5 МВт в экспериментальном горизонтальном канале реактора ИР-8.

Значения скоростей реакций $^{102}\text{Pd}(n, \gamma)^{103}\text{Pd}$ и $^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$, полученные по формуле (1), составили соответственно $(1.01 \pm 0.12) \times 10^{-11}$ и $(0.77 \pm 0.13) \times 10^{-11} \text{ с}^{-1}$.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные результаты позволяют в будущем планировать наработку ^{103}Ru и ^{103}Pd в эксперименталь-

ном горизонтальном канале реактора ИР-8, а также свидетельствуют о том, что в указанном канале реактора ИР-8 за относительно короткое время на мощности 5 МВт можно наработать активности ^{103}Ru и ^{103}Pd , достаточные для изготовления $^{103}\text{Ru}/^{103m}\text{Rh}$ и $^{103}\text{Pd}/^{103m}\text{Rh}$ изотопных генераторов эмиттера Оже и конверсионных электронов ^{103m}Rh , которые можно использовать в дальнейшем для создания нерадиотоксичных РФП.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. P. Bernhardt, E. Forssell-Aronsson, L. Jacobsson, and G. Skarnemark, *Acta Oncol.* **40**, 602 (2001).
2. D. Filosofov, E. Kurakina, and V. Radchenko, *Nucl. Med. Biol.* **94–95**, 1 (2021).
3. G. Skarnemark, A. Ödegaard-Jensen, J. Nilsson, B. Bartos, E. Kowalska, A. Bilewicz, and P. Bernhardt, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **280**, 371 (2009).
4. С. С. Арзуманов, В. С. Буслаев, Б. Г. Ерозолимский, С. В. Масалович, А. Н. Стрепетов, В. П. Федунин, А. И. Франк, А. Ф. Яшин, Б. А. Яценко, Препринт ИАЭ-4216/14 (1985).
5. D. De Frenne, *Nucl. Data Sheets* **110**, 2081 (2009).
6. A. J. Koning, D. Rochman, J. Sublet, N. Dzysiuk, M. Fleming, and S. van der Marck, *Nucl. Data Sheets* **155**, 1 (2019).

MEASUREMENT OF THE RATES OF THE $^{102}\text{Pd}(n, \gamma)^{103}\text{Pd}$ AND $^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$ REACTIONS IN THE HORIZONTAL CHANNEL OF THE IR-8 REACTOR AT NRC “KURCHATOV INSTITUTE”

V. A. Zagryadsky¹⁾, K. O. Korolev¹⁾, Y. M. Kravets¹⁾, T. M. Kuznetsova¹⁾, A. V. Kurochkin¹⁾,
K. A. Makoveeva¹⁾, I. I. Skobelin¹⁾, A. N. Strepetov¹⁾, T. A. Udalova¹⁾

¹⁾ National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, Russia

Metastasis is one of the main causes of relapse and subsequent high mortality from cancer. Metastases can contain very few cells and spread throughout the body. Despite the existing variety of diagnostic imaging methods, in practice, the resolution of none of them allows one to unambiguously diagnose the presence of a tumor (clump of cancer cells) smaller than 1–2 mm in size. After surgery and tumor removal, patients are typically offered chemotherapy, external beam radiation therapy, or α - or β -emitter radionuclide therapy. This therapy has side effects that lead to additional risks and may interfere with continued treatment. Recently, a number of works, in contrast to the traditional approach, have proposed using “short-range” radionuclides instead of α - or β -emitters [1–3]. It is convenient to use Auger or conversion electron emitters as “short-acting” therapeutic agents. Auger electrons and conversion electrons have a short range and high specific linear energy loss in biological tissue; they are capable of damaging cells within a few tens of microns, but do not have a radiotoxic effect over long distances, without damaging healthy cells and tissues. The most efficient and convenient Auger and conversion electron emitters for practical use include ^{103m}Rh ($T_{1/2} = 56.1$ min), which has the lowest ratio of the number of γ quanta to electrons [1] and can be obtained by a generator method. The predecessors of ^{103m}Rh ($T_{1/2} = 56.1$ min) in the generator can be ^{103}Ru ($T_{1/2} = 39.247$ days) or ^{103}Pd ($T_{1/2} = 16.99$ days). In order to clarify the prospects for producing these precursors, we have measured the rates of reactions $^{102}\text{Ru}(n, \gamma)^{103}\text{Ru}$ and $^{102}\text{Pd}(n, \gamma)^{103}\text{Pd}$ upon neutron irradiation of metal ruthenium of natural isotopic composition and metal palladium, enriched in the ^{102}Pd isotope to 96.36%, in a horizontal experimental channel of the IR-8 reactor.